

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-040814

(43)Date of publication of application : 10.02.1997

(51)Int.Cl.

C08L 23/02
B29C 45/14
B29C 47/00
//(C08L 23/02
C08L 23:08)
B29K 19:00

(21)Application number : 07-193816

(71)Applicant : TOYODA GOSEI CO LTD

(22)Date of filing : 28.07.1995

(72)Inventor : YOSHIDA TORU
ICHIKAWA MASAYOSHI

(54) THERMOPLASTIC ELASTOMER COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a TPE composition having sufficiently high weld strength to EPDM without using an adhesive layer.

SOLUTION: This thermoplastic elastomer composition is used in the forming of a welded skin layer or weld-molded article on a vulcanized molded article composed of an ethylene-propylene-nonconjugated diene terpolymer (EPDM). The composition is produced by compounding 100 pts.wt. of a thermoplastic elastomer with 5-45 pts.wt. of an ethylene/1-octene copolymer having a 1-octene content of 10-30wt.% and a molecular weight distribution Mw/Mn of 1.0-3.5.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

*** NOTICES ***

JPO and NCIP I are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] As opposed to the vulcanization mold goods which consist of a rubber compound of an ethylene propylene nonconjugated diene ternary polymerization object (EPDM) Are the constituent faced and used for forming a welding epidermis layer or a welding Plastic solid, and the thermoplastic-elastomer 100 weight section is received. Ethylene / 1-octene copolymer : It comes to blend 5 - 45 weight section. Said ethylene / 1-octene copolymer make the 1-octene content 10 - 30wt%, and is molecular-weight-distribution Mw / Mn of this polymer.

Thermoplastic-elastomer constituent characterized by what is been within the limits of 1.0-3.5.

[Claim 2] The thermoplastic-elastomer constituent with which it is characterized by said thermoplastic elastomer being either thermoplastic elastomer olefin, styrene thermoplastic elastomers or those mixture in claim 1.

[Claim 3] The manufacture approach of the vulcanization mold goods characterized by using that to which melting of the thermoplastic-elastomer constituent possessing following requirements ** was carried out as said melting ingredient in the approach of manufacturing the vulcanization mold goods which a melting ingredient is contacted to the extrusion vulcanization mold goods which consist of an EPDM rubber compound, and form a welding epidermis layer or a welding Plastic solid.

** To the thermoplastic-elastomer 100 weight section, it comes to blend ethylene / 1-octene copolymer 5 - 45 weight sections, and said ethylene / 1-octene copolymer make the 1-octene content 10 - 30wt%, and they are molecular-weight-distribution Mw / Mn of this polymer. It is within the limits of 1.0-3.5.

[Claim 4] The manufacture approach of vulcanization mold goods that said thermoplastic elastomer is characterized by being thermoplastic elastomer olefin, styrene thermoplastic elastomers, or those mixture in claim 4.

[Claim 5] The manufacture approach of the vulcanization mold goods characterized by carrying out the dryblend of the pellets of ethylene / 1-octene copolymer to thermoplastic elastomer, supplying to an extruding press machine or an injection molding machine directly, and forming a welding epidermis layer or a welding Plastic solid in either of claims 3-4.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIP I are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to a thermoplastic-elastomer (TPE) system constituent. It is a suitable TPE system constituent to carry out expansion molding of a corner and variant connections, and the variant terminal sections, such as a weather strip, especially.

[0002] Here, although the case where the connection of a weather strip is fabricated is taken and explained to an example, of course, the TPE system constituent of this invention can be applied, also when forming the epidermis sections, such as a door trim, in a welding epidermis layer, when forming a welding Plastic solid in an EPDM Plastic solid.

[0003]

[Explanation of the vocabulary] etc.

(1) Carry out the following of the list of the cable addresses to be used by the following explanation.

[0004] EPDM: Amorphous ethylene propylene nonconjugated diene terpolymer PP: Polypropylene PE: Polyethylene TPE: Thermoplastic elastomer (2) Especially a combination unit is a gravitational unit unless it refuses.

[0005]

[Description of the Prior Art] Generally, manufacture of a weather strip cut out the extrusion vulcanization mold goods which consist of an EPDM rubber compound, was set to metal mold from one side or both sides, and was performed by pouring in and carrying out vulcanization die forming of the of-the-same-kind rubber molding material to the cavity formed.

[0006] On the other hand, it is possible that it changes to EPDM and a vulcanization process uses TPE(s), such as an unnecessary polyolefine system and a styrene system, from the standpoint of productivity as an ingredient of this die forming.

[0007] However, generally, since a vulcanization process does not have TPE, vulcanization EPDM mold goods and adhesion of TPE are difficult, and it is necessary to unify and they cannot usually be too referred to as enough from the standpoint of productivity using adhesives.

[0008] Moreover, also when the finishing coat (welding epidermis layer) which consists of resin was formed in the design side of bodies of mold goods, such as a mall weather strip made from EPDM, the adhesives layer (it consists of an EPDM/NBR blend) needed to be formed, namely, two color extrusion needed to be carried out, it needed to carry out, and it was not able to be too said from the standpoint of productivity that it was enough (reference, such as JP,3-240531,A and a No. 243349 official report).

[0009] In view of the above, even if this invention does not mind an adhesives layer, it aims at offering the TPE system constituent with which sufficient welding reinforcement is obtained to EPDM.

[0010]

[Means for Solving the Problem] The TPE system constituent of this invention solves the above-mentioned technical problem by the following configuration.

[0011] To the vulcanizate which consists of an EPDM compound, are the constituent faced and used for forming a welding epidermis layer or a welding Plastic solid, and the TPE100 section is

received. Ethylene / 1-octene copolymer: It comes to carry out 5-45 section combination, and ethylene / 1-octene copolymer makes the 1-octene content 10 - 30wt%, and they are molecular-weight-distribution Mw / Mn of this polymer. It is characterized by what is been within the limits of 1.0-3.5.

[0012]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of operation of this invention is explained.

[0013] (1) In the case of a weather strip (for example, the thing shown in Table 1), as an EPDM compound which forms the vulcanizate which is the adherend of the TPE system constituent of this invention, it is usable.

[0014]

[Table 1]

EPDM 配合処方

EPDMポリマー (JSR EP107F)	100
FEDカーボン (東海カーボン シートG-SO)	185
パラフィン系オイル (出光興産 PW-380)	90
ZnO	5
ステアリン酸	1
ポリエチレン	20
CaO	5
加工助剤	5
イオウ	0.8
加硫促進剤	4.6

[0015] In addition, EPDM means the amorphous ethylene- α olefin-nonconjugated diene which is represented by the ethylene-propylene-nonconjugated diene ternary polymerization object and in which sulfur vulcanization is possible. Here, as α olefin, 1-butene, 1-hexene, styrene, etc. can be mentioned, and a dicyclopentadiene, 1, 4-hexadiene, methylene norbornene, a methyl tetrahydro indene, ethylidene norbornene, etc. can be mentioned as nonconjugated diene.

[0016] Although EPDM changes with weatherability, physical reinforcement, etc. which are demanded, it usually uses the thing of iodine value:5-30 and Mooney viscosity (ML1+4 100 degree C) 30-110.

[0017] (2) The thing which comes to carry out ethylene / 1-octene copolymer:5-45 section combination is used for the constituent faced and used for forming a welding epidermis layer or a welding Plastic solid to the thermoplastic-elastomer 100 section to the vulcanizate which consists of the above-mentioned EPDM compound.

[0018] If sufficient adhesion (welding) nature of ethylene / 1-octene copolymer is difficult to get and it exceeds the 45 sections to EPDM vulcanizate in the less than 5 sections here, while being unable to desire adhesive improvement beyond it, since properties, such as a compression set, fall, it is not desirable.

[0019] (3) As the above TPE, it is suitably usable in the olefin system TPE, the styrene systems TPE, or those mixture.

[0020] Here, the olefin system TPE uses polyolefines, such as crystalline PP-PE, as a hard segment, and uses polymers for rubber, such as EPM and EPDM, as a soft segment. Although a blend mold, a partial bridge formation mold blend mold, a full bridge formation blend mold, and any are sufficient, when using it for manufacture of a weather strip, a part and a full bridge formation blend mold are desirable from standpoints, such as compression set-proof nature and thermal resistance.

[0021] The styrene system TPE uses polystyrene as a hard segment, and uses a soft segment

as polybutadiene (B), polyisoprene (I), polyethylene/polybutylene (EB), polyethylene / polypropylene (EP). Corresponding to a hard segment, it is called SBS, SIS, SEBS, and SEPS for short, respectively. SEBS and SEPS which do not have a double bond in a principal chain, but were [among these] excellent in weatherability are especially desirable.

[0022] Although the ratio of the hard segment and soft segment in above-mentioned olefin system and styrene system TPE changes with hardness demanded, when it is referred to as the former / latter = 10 / 90 - 50/50, for example, usually uses it for manufacture of a weather strip, it is set to the former / latter = 10 / 90 - 30/70.

[0023] (4) The above-mentioned ethylene / 1-octene copolymer are polymers to which copolymerization of the 1-octene was carried out using the single site catalyst to ethylene, and has narrow molecular weight distribution and uniform comonomer distribution.

[0024] For example, it is suitably usable in the approach indicated by the Patent Publication Heisei No. 500622 [seven to] official report, i.e., the thing manufactured using the homogeneous catalyst (a metal coordinated complex and activation cocatalyst).

[0025] The specification of this ethylene / 1-octene copolymer makes 1-octene content 10 - 30%, and is molecular-weight-distribution Mw / Mn of this polymer. It considers as the range of 1.0-3.5.

[0026] At less than 10%, the degree of hardness of a copolymer becomes high, a degree-of-hardness rise becomes remarkable at TPE at the time of a blend, and the content of 1-octene in ethylene / 1-octene copolymer is not desirable. Moreover, it is not desirable, in order that the melting point of a copolymer may become low and may have a bad influence on the thermal resistance of TPE, or the configuration holdout at the time of an elevated temperature, if it exceeds 30%.

[0027] On the other hand, they are molecular-weight-distribution Mw / Mn. If 3.5 is exceeded, a low molecular weight constituent increases, adhesiveness (feeling of smeariness) is discovered, and it is not desirable.

[0028] (5) Next, use the above-mentioned TPE constituent and explain how to form a welding Plastic solid or a welding epidermis layer.

[0029] For example, when forming the corner section 13 of the weather strip 11 as shown in drawing 1, the extrusion vulcanization mold goods 15 and 15 which consist of an EPDM rubber compound are cut out, from both sides, it sets to metal mold, and die forming of the melting ingredient of the above-mentioned TPE constituent is injected and carried out to the cavity formed (injection temperature is made into temperature higher 10-100 degrees C than the melting point.). At this time, since the above-mentioned TPE constituent is welded good, the adhesives layer is unnecessary and can manufacture the weather strip of high quality to productivity fitness.

[0030] On the occasion of this injection molding, TPE, and ethylene / 1-octene copolymer supply pellets to an injection molding machine directly, can carry out dryblend by the ratio of arbitration, and contributes to improvement in productivity further.

[0031] Moreover, when forming the finishing coat (welding epidermis layer) 19 in the design side D of the mall body 17 as shown in drawing 2, the mall body 17 is extruded, it extrudes to the design side D of the mall body 17 after vulcanization, and the welding epidermis layer 19 is formed with a flow coat etc. At this time, since the above-mentioned TPE constituent is welded good, the adhesives layer is unnecessary and can manufacture the mall of high quality to productivity fitness.

[0032]

[Function and Effect of the Invention] the TPE system constituent of this invention -- like the above -- thermoplasticity -- as the below-mentioned example shows, even if it does not mind an adhesives layer by the configuration which blended ethylene / 1-octene copolymer at a predetermined rate, sufficient welding adhesive property is acquired to EPDM vulcanizate.

[0033] Therefore, when the TPE system constituent concerned tends to be used and it is going to manufacture a weather strip for the terminal section and the connection of a weather strip by die forming, it becomes easy to manufacture the weather strip of high quality to productivity fitness.

[0034] In addition, as the adhesion approach (the welding approach) of TPE and EPDM vulcanizate, although the patentability of this invention is not affected at all, the thing of the following configuration is proposed by JP,59-159329,A, without using adhesives.

[0035] "(A) The vulcanizate of the ethylene copolymer rubber compound which blended the wax, (B) — the approach of making it paste by contacting the thermoplastic elastomer which uses as a principal component polyolefine system resin (I) and the monoolefin system copolymer rubber (II) over which the bridge was constructed partially at the temperature more than the softening temperature of this thermoplastic elastomer. It is presumed that they are not easy to maintain the original physical properties (especially a compression set, reinforcement, surface physical properties, etc.) of EPDM vulcanizate since", however the adhesion approach concerned need to blend a wax with an EPDM compound.

[0036]

[Example] Hereafter, in order to check the effectiveness of this invention, the example performed with the example of a comparison is explained.

[0037] (1) preparation [of a sample]: — ** — after kneading the EPDM compound shown in said table 1 with a 8 inch roll, it extruded at 80 degrees C with 20mm single screw extruder, and the belt-like extrusion object of cross-section configuration 30mmx3mmt was obtained.

[0038] After vulcanizing this for 10 minutes in 220-degree C oven, it cut to 30mm die length, and considered as the piece of vulcanized rubber.

[0039] ** The above was set into the metal mold cavity of 100mm**x3mmt, injection molding of the TPE system constituent shown in Tables 2-4 at 230 degrees C was carried out, and the sample for adhesion tests was prepared.

[0040]

[Table 2]

材料名		比較例 1	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
		ミラスト 7-4010N (TPO)	4010N+ EG8100 5 PHR	4010N+ EG8100 10 PHR	4010N+ EG8100 20 PHR	4010N+ EG8100 30 PHR	4010N+ EG8100 40 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	50	50	51	53	54	55
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	1150	1230	1370	1580	1800	2030
	破断伸び (%)	160	160	190	220	260	300
	破壊モード	界面破壊	T-10	T-30	T-60	T-60	T-80

[0041]

[Table 3]

材料名		比較例 2	実施例 6	実施例 7	実施例 8	比較例 3	実施例 9
		4010N+ ミラツ 67 10 PHR	4010N+ SM8400 30 PHR	4010N+ EG8150 30 PHR	4010N+ EG8200 30 PHR	住友TPE -SB 2400 (TPS)	※ 1 30 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	60	51	53	54	45	50
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	1460	1410	1720	1640	780	1470
	破断伸び (%)	150	210	250	260	170	340
	破壊モード	T-20	T-90	T-60	T-90	界面破壊	T-80

※ 1 : 住友TPE-SB 2400+EG8100

[0042]

[Table 4]

		比較例 4	実施例 10	実施例 11	比較例 5	実施例 12	実施例 13
材料名		サトフル 111-64 (TPO)	111-64+ HM1100 30 PHR	111-64+ EG8200 30 PHR	住友TPE 3782 (TPO)	3782+ KC8852 30 PHR	3782+ HM1100 30 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	7 2	7 0	6 7	7 2	7 0	7 1
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	2 0 9 0	3 0 2 0	2 9 5 0	2 4 5 0	3 2 9 0	3 1 2 0
	破断伸び (%)	1 3 0	2 6 0	2 8 0	2 2 0	3 2 0	3 2 0
	破壊モード	界面破壊	T-80	T-100	界面破壊	T-100	T-100

[0043] In addition, the blend of TPE, and the ethylene / 1-octene copolymer or the low consistency PE was performed by feeding the dryblend object of a pellet into an injection molding machine.

[0044] The description of used TPE, and an ethylene / 1-octene copolymer is shown in Table 3-4, respectively.

[0045]

[Table 5]

	オレフィン系 TPE			スチレン系 TPE	LDPE
	ミラソン -4010N ※1	サトフル 111-64 ※2	住友TPE 3782 ※3	住友TPE-SB 2400 ※3	ミラソン 67 ※1
硬度 (JIS A)	50	72	72	45	49 ※4
比重	0.88	0.96	0.88	0.88	0.92
引張強さ (MPa)	4.0	6.0	9.0	7.0	12
破断伸び (%)	500	390	700	770	500

※1 : 三井石油化学工業株式会社製

※2 : エーイーエスジャパン株式会社製

※3 : 住友化学工業株式会社製

※4 : Shore D 硬度

[0046]

[Table 6]

	ENGAGE EG8150	ENGAGE EG8100	ENGAGE EG8200	ENGAGE SM8400	ENGAGE KC8852	AFFINITY HM1100
硬度 (Shore D)	75	75	75	72	—	76
比重	0.87	0.87	0.87	0.87	0.88	0.88
引張強さ (MPa)	11	10	7.6	—	—	11
破断伸び (%)	880	800	>1000	>1000	—	1300
オクテン含量 (%)	25	24	24	24	22	20
M _w / M _n (分子量分布)	2	2	2	2	2	2

※全てダウケミカル社製

[0047] (2) From adhesive strength test above-mentioned each sample, the test piece of 25mm width was cut off, and the rate for 200mm/, the tension test was performed and it considered as bond strength with breaking strength.

[0048] Here, "T-a" in destructive mode shows that a% of "fracture surface is base material destruction of TPE."

(3) although a test result and its evaluation test result are shown in Tables 2-4 — a welding adhesive property — TPE — if it compares when independent (example 1-3-4-5 of a

comparison), of course, when the low consistency PE is blended to TPE (example 2 of a comparison), even if it compares, increase, and it turns out that increase of a constituent degree of hardness is also small.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The perspective view of the weather strip which is an example of the product manufactured with the application of the TPE constituent of this invention

[Drawing 2] The sectional view of the mall which are other same examples of a product

[Description of Notations]

- 13 -- Corner section (welding Plastic solid)
- 15 -- Extrusion vulcanization mold goods
- 17 -- Mall body (vulcanization mold goods)
- 19 -- Finishing coat (welding epidermis layer)

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-40814

(43)公開日 平成9年(1997)2月10日

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	片内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 23/02	L C D		C 0 8 L 23/02	L C D
B 2 9 C 45/14		9543-4F	B 2 9 C 45/14	
47/00		9349-4F	47/00	
// (C 0 8 L 23/02				
23: 08)				

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平7-193816	(71)出願人	000241463 豊田合成株式会社 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1 番地
(22)出願日	平成7年(1995)7月28日	(72)発明者	吉田 徹 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1 番地 豊田合成株式会社内
		(72)発明者	市川 昌好 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1 番地 豊田合成株式会社内
		(74)代理人	弁理士 飯田 堅太郎 (外1名)

(54)【発明の名称】 熱可塑性エラストマー組成物

(57)【要約】

【課題】 接着剤層を介さなくてもEPDMに対して十分な融着強度が得られるTPE系組成物を提供すること。

【解決手段】 エチレンプロピレン非共役ジエン三元共重合体 (EPDM) のゴム配合物からなる加硫成形成品に対して、融着表皮層または融着成形成体を形成するに際して使用する組成物。熱可塑性エラストマー100重量部に対して、エチレン/1-オクテンコポリマー: 5~45重量部配合されてなり、エチレン/1-オクテンコポリマーが、その1-オクテン含量を10~30wt%とし、かつ、ポリマーの分子量分布 M_w/M_n が1.0~3.5の範囲内にあることを特徴とする。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エチレンプロピレン非共役ジェン三元共重合体（EPDM）のゴム配合物からなる加硫成形品に対して、融着表皮層または融着成形体を形成するに際して使用する組成物であって、

熱可塑性エラストマー100重量部に対して、エチレン／1-オクテンコポリマー：5～45重量部が配合されてなり、

前記エチレン／1-オクテンコポリマーが、その1-オクテン含量を10～30wt%とし、かつ、該ポリマーの分子量分布 M_w/M_n が1.0～3.5の範囲内にある、

ことを特徴とする熱可塑性エラストマー組成物。

【請求項2】 請求項1において、前記熱可塑性エラストマーが、オレフィン系熱可塑性エラストマー、スチレン系熱可塑性エラストマー、又はそれらの混合物のいずれかであることを特徴とする熱可塑性エラストマー組成物。

【請求項3】 EPDMゴム配合物からなる押出し加硫成形品に溶融材料を接触させて、融着表皮層又は融着成形体を形成する加硫成形品を製造する方法において、前記溶融材料として、下記要件①を具備する熱可塑性エラストマー組成物を溶融させたものを使用することを特徴とする加硫成形品の製造方法。

①熱可塑性エラストマー100重量部に対して、エチレン／1-オクテンコポリマー5～45重量部が配合されてなり、前記エチレン／1-オクテンコポリマーが、その1-オクテン含量を10～30wt%とし、かつ、該ポリマーの分子量分布 M_w/M_n が1.0～3.5の範囲内にある。

【請求項4】 請求項4において、前記熱可塑性エラストマーが、オレフィン系熱可塑性エラストマー、スチレン系熱可塑性エラストマー、又はそれらの混合物であることを特徴とする加硫成形品の製造方法。

【請求項5】 請求項3～4のいずれかにおいて、熱可塑性エラストマーとエチレン／1-オクテンコポリマーのペレット同士をドライブレンドして、直接、押出成形機又は射出成形機に投入し、融着表皮層又は融着成形体を形成することを特徴とする加硫成形品の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、熱可塑性エラストマー（TPE）系組成物に関する。特に、ウェザーストリップ等のコーナ・異形接続部や異形端部を融着成形するのに好適なTPE系組成物である。

【0002】 ここでは、ウェザーストリップの接続部を形成する場合を例に採り説明するが、本発明のTPE系組成物は、EPDM成形体に融着成形体を形成する場合は勿論、ドアトリム等の表皮部を融着表皮層で形成する場合にも適用可能である。

【0003】

【用語の説明等】

(1) 以下の説明で、使用する略号の一覧を下記する。

【0004】 EPDM：非晶性エチレンプロピレン非共役ジェンターポリマー

PP：ポリプロピレン

PE：ポリエチレン

TPE：熱可塑性エラストマー

(2) 配合単位は、特に断らない限り、重量単位である。

【0005】

【従来の技術】 一般的に、ウェザーストリップの製造は、EPDMゴム配合物からなる押出し加硫成形品を裁断して、一方又は双方から金型にセットし、形成されるキャビティに、同種ゴム成形材料を注入し加硫型成形することにより行っていた。

【0006】 他方、この型成形の材料として、EPDMに変わって、生産性の見地から、加硫工程が不要なポリオレフィン系、スチレン系等のTPEを使用することが考えられる。

【0007】 しかし、一般に、加硫EPDM成形品と、TPEの接着は、TPEが加硫工程がないため困難であり、通常、接着剤を用いて、一体化する必要がある、やはり、生産性の見地から十分とは言えない。

【0008】 また、EPDM製のモール・ウェザーストリップ等の成形品本体の意匠面に、樹脂からなる仕上げ塗膜層（融着表皮層）を形成する場合も、接着剤層（EPDM/NBRブレンドからなる）を形成する必要がある、即ち、二色押出しする必要があり、やはり、生産性の見地から十分とは言えなかった（特開平3-240531・243349号公報等参照）。

【0009】 本発明は、上記にかんがみて、接着剤層を介さなくてもEPDMに対して十分な融着強度が得られるTPE系組成物を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】 本発明のTPE系組成物は、上記課題を下記構成により解決するものである。

【0011】 EPDM配合物からなる加硫物に対して、融着表皮層または融着成形体を形成するに際して使用する組成物であって、TPE100部に対して、エチレン／1-オクテンコポリマー：5～45部配合されてなり、エチレン／1-オクテンコポリマーが、その1-オクテン含量を10～30wt%とし、かつ、該ポリマーの分子量分布 M_w/M_n が1.0～3.5の範囲内にある、ことを特徴とする。

【0012】

【発明の実施の形態】 以下、本発明の実施の形態を説明する。

【0013】 (1) 本発明のTPE系組成物の被着体である加硫物を形成するEPDM配合物としては、ウェザーストリップの場合、例えば、表1に示すものを使用可能で

ある。

【0014】

*【表1】

*

EPDM配合処方

EPDMポリマー (JSR EP107F)	100
FEFカーボン (東海カーボン シートG-S0)	185
パラフィン系オイル (出光興産 PW-380)	90
ZnO	5
ステアリン酸	1
ポリエチレン	20
CaO	5
加工助剤	5
イオウ	0.8
加硫促進剤	4.6

【0015】なお、EPDMとは、エチレン-プロピレン-非共役ジエン三元共重合体に代表される、イオウ加硫可能な非晶性エチレン- α オレフィン-非共役ジエンを意味する。ここで、 α オレフィンとしては、1-ブテン、1-ヘキセン、スチレン等を挙げることができる、また、非共役ジエンとしては、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、メチレンノルボルネン、メチルテトラヒドロインデン、エチリデンノルボルネン等を挙げることができる。

【0016】EPDMは、要求される耐候性、物理的強度等により異なるが、通常、沃素価：5～30、ムーニー粘度 (ML_{1,2}, 100℃) 30～110のものを使用する。

【0017】(2) 上記EPDM配合物からなる加硫物に対して、融着表皮層または融着成形体を形成するに際して使用する組成物は、熱可塑性エラストマー100部に対して、エチレン/1-オクテンコポリマー：5～45部配合されてなるものを使用する。

【0018】ここで、エチレン/1-オクテンコポリマーが5部未満では、EPDM加硫物に対して十分な接着（融着）性が得難く、45部を越えると、それ以上の接着性の向上が望めないと共に、圧縮永久歪等の特性が低下するので望ましくない。

【0019】(3) 上記TPEとしては、オレフィン系TPE、スチレン系TPE、又はそれらの混合物を好適に使用可能である。

【0020】ここで、オレフィン系TPEは、結晶性PP・PE等のポリオレフィンをハードセグメントとし、EPM、EPDM等のゴム用ポリマーをソフトセグメントとするものである。ブレンド型、部分架橋型ブレンド型、完全架橋ブレンド型、いずれでも良いが、ウェザーストリップの製造に使用する場合は、耐圧縮永久歪み性、耐熱性等の見地から、部分・完全架橋ブレンド型が望ま

しい。

【0021】スチレン系TPEは、ポリスチレンをハードセグメントとし、ソフトセグメントを、ポリブタジエン(B)、ポリイソブレン(I)、ポリエチレン/ポリブチレン(EB)、ポリエチレン/ポリプロピレン(EP)等とするものである。ハードセグメントに対応して、それぞれ、SBS、SIS、SEBS、SEPSと略称される。これらの内で、二重結合を主鎖に有せず耐候性に優れたSEBS、SEPSが、特に望ましい。

【0022】上記オレフィン系・スチレン系TPEにおける、ハードセグメントとソフトセグメントの比率は、要求される硬さ等により異なるが、通常、前者/後者=10/90～50/50とし、例えば、ウェザーストリップの製造に使用する場合は、前者/後者=10/90～30/70とする。

【0023】(4) 上記エチレン/1-オクテンコポリマーは、エチレンに対して1-オクテンをシングルサイト触媒を用いて共重合させたポリマーであり、狭い分子量分布と均一なコモノマー分布を有する。

【0024】例えば、特表平7-500622号公報に記載されている方法、即ち、均一系触媒（金属配位錯体と活性化共触媒）を使用して製造したものを好適に使用可能である。

【0025】このエチレン/1-オクテンコポリマーの仕様は、1-オクテン含量を10～30%とし、かつ、該ポリマーの分子量分布 M_w/M_n が1.0～3.5の範囲とする。

【0026】エチレン/1-オクテンコポリマー中の1-オクテンの含量が、10%未満では、コポリマーの硬度が高くなり、TPEにブレンド時、硬度上昇が顕著となり、好ましくない。また、30%を超えると、コポリマーの融点が低くなり、TPEの耐熱性や高温時の形状保持性に悪影響を及ぼすため、好ましくない。

20

30

40

50

【0027】一方、分子量分布 M_w/M_n が、3.5を超えると、低分子量成分が増加し、粘着性（ベタツキ感）が発現し、好ましくない。

【0028】(5) 次に、上記TPE組成物を使用して、融着成形体または融着表皮層を形成する方法を説明する。

【0029】例えば、図1に示すような、ウェザーストリップ11のコーナ部13を形成する場合は、EPDMゴム配合物からなる押出し加硫成形品15、15を裁断して、双方から金型にセットし、形成されるキャビティに、上記TPE組成物の溶融材料を射出して型成形する（射出温度は、融点より10～100℃高い温度とする。）。このとき、上記TPE組成物は良好に融着するため接着剤層は不要であり、生産性良好に高品質のウェザーストリップを製造できる。

【0030】この射出成形に際して、TPEとエチレン／1-オクテンコポリマーは、射出成形機にベレット同士を直接に投入して、任意の比率でドライブレンドでき、生産性の向上にさらに寄与する。

【0031】また、図2に示すような、モール本体17の意匠面Dに仕上げ塗膜層（融着表皮層）19を形成する場合は、モール本体17を押出し加硫後、モール本体17の意匠面Dに、押出し、フローコート等により融着表皮層19を形成する。このとき、上記TPE組成物は良好に融着するため接着剤層は不要であり、生産性良好に高品質のモールを製造できる。

【0032】

【発明の作用・効果】本発明のTPE系組成物は、上記の如く、熱可塑性TPEにエチレン／1-オクテンコポリマーを所定割合でブレンドした構成により、後述の実施例で示す如く、接着剤層を介さなくてもEPDM加硫物に対して十分な融着接着性が得られる。

【0033】従って、当該TPE系組成物を使用して、ウェザーストリップの端末部や接続部を型成形により、ウ*

*エザーストリップを製造しようとした場合、高品質のウェザーストリップを、生産性良好に製造することが容易となる。

【0034】なお、接着剤を用いないで、TPEとEPDM加硫物との接着方法（融着方法）として、本発明の特許性に何ら影響を与えるものではないが、特開昭59-159329号公報で下記構成のものが提案されている。

【0035】「(A) ワックスを配合したエチレン共重合体ゴム配合物の加硫物と、(B) ポリオレフィン系樹脂(I)と部分的に架橋されたモノオレフィン系共重合体ゴム(II)を主成分とする熱可塑性エラストマーとを該熱可塑性エラストマーの軟化点以上の温度で接触させることにより接着させる方法。」しかし、当該接着方法は、EPDM配合物にワックスを配合する必要があるため、EPDM加硫物の本来的物性（特に、圧縮永久歪・強度・表面物性等）を維持することが容易でないと推定される。

【0036】

【実施例】以下、本発明の効果を確認するために、比較例とともに行った実施例について説明をする。

【0037】(1) サンプルの調製：

①前記表1に示すEPDM配合物を、8インチロールで混練した後、20mm単軸押出機にて80℃で押出し、断面形状30mm×3mmtのベルト状押出物を得た。

【0038】これを220℃のオープン中で10分間加硫した後、30mm長さに切断して、加硫ゴム片とした。

【0039】②100mm□×3mmtの金型キャビティ中に、上記をセットし、230℃にて表2～4に示すTPE系組成物を射出成形し、接着試験用サンプルを調製した。

【0040】

【表2】

材料名		比較例1	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
		ミラストマー 4010N (TPO)	4010N+ EG8100 5 PHR	4010N+ EG8100 10 PHR	4010N+ EG8100 20 PHR	4010N+ EG8100 30 PHR	4010N+ EG8100 40 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	50	50	51	53	54	55
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	1150	1230	1370	1580	1800	2030
	破断伸び (%)	160	160	190	220	260	300
	破壊モード	界面破壊	T-10	T-30	T-60	T-60	T-80

【0041】

【表3】

材料名		比較例2	実施例6	実施例7	実施例8	比較例3	実施例9
		4010N+ ミラツ 67 10 PHR	4010N+ SM8400 30 PHR	4010N+ EG8150 30 PHR	4010N+ EG8200 30 PHR	住友TPE -SB 2400 (TPS)	※1 30 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	60	51	53	54	45	50
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	1460	1410	1720	1640	780	1470
	破断伸び (%)	150	210	250	260	170	340
	破壊モード	T-20	T-90	T-60	T-90	界面破壊	T-80

※1: 住友TPE-SB 2400+EG8100

【0042】

* * 【表4】

材料名		比較例4	実施例10	実施例11	比較例5	実施例12	実施例13
		サトフル 111-64 (TPO)	111-64+ HM1100 30 PHR	111-64+ EG8200 30 PHR	住友TPE 3782 (TPO)	3782+ KC8852 30 PHR	3782+ HM1100 30 PHR
組成物	硬度 (JIS A)	72	70	67	72	70	71
対EPDM 接着性	接着強度 (KPa)	2090	3020	2950	2450	3290	3120
	破断伸び (%)	130	260	280	220	320	320
	破壊モード	界面破壊	T-80	T-100	界面破壊	T-100	T-100

【0043】なお、TPEと、エチレン/1-オクテン
コポリマーまたは低密度PEのブレンドはペレットのド
ライブレンド物を射出成形機に投入することによって行
った。

※【0044】使用したTPE、及び、エチレン/1-オ
クテンコポリマーの性状を、それぞれ表3・4に示す。

【0045】

※ 【表5】

	オレフィン系TPE			スチレン系TPE	LDPE
	ミラツマ 4010N ※1	サトフル 111-64 ※2	住友TPE 3782 ※3	住友TPE-SB 2400 ※3	ミラツ67 ※1
硬度 (JIS A)	50	72	72	45	49 ※4
比重	0.88	0.96	0.88	0.88	0.92
引張強さ (MPa)	4.0	6.0	9.0	7.0	12
破断伸び (%)	500	390	700	770	500

※1: 三井石油化学工業株式会社製

※2: エーイーエスジャパン株式会社製

※3: 住友化学工業株式会社製

※4: Shore D 硬度

【0046】

【表6】

	ENGAGE EG8150	ENGAGE EG8100	ENGAGE EG8200	ENGAGE SM8400	ENGAGE KC8852	AFFINITY HM1100
硬度 (Shore D)	75	75	75	72	—	76
比 重	0.87	0.87	0.87	0.87	0.88	0.88
引張強さ (MPa)	11	10	7.6	—	—	11
破断伸び (%)	880	800	>1000	>1000	—	1300
オクテン含量 (%)	25	24	24	24	22	20
M _w /M _n (分子量分布)	2	2	2	2	2	2

※全てダウケミカル社製

【0047】(2) 接着強度試験

上記各サンプルから、25mm巾のテストピースを切り取り、200mm/分の速度で、引張試験を行ない、破断強度をもって接着強度とした。

【0048】ここで、破壊モードにおける「T-a」は、「破断面のa%が、TPEの基材破壊であることを示す。」

(3) 試験結果及びその評価

試験結果を表2～4に示すが、融着接着性は、TPE単独の場合（比較例1・3・4・5）に比しては勿論、TPEに低密度PEをブレンドした場合（比較例2）に比*

*しても増大し、かつ、組成物硬度の増大も小さいことが分かる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のTPE組成物を適用して製造する製品の一例であるウェザーストリップの斜視図

【図2】同じく製品の他の例であるモールの断面図

【符号の説明】

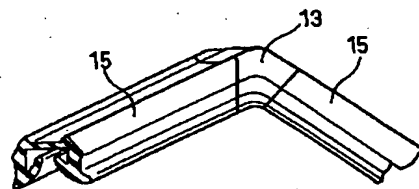
13…コーナ部（融着成形体）

15…押出し加硫成形品

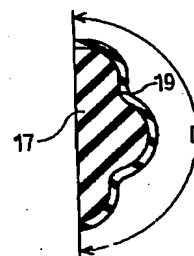
17…モール本体（加硫成形品）

19…仕上げ塗膜層（融着表皮層）

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁶

B29K 19:00

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所